

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-059385

(43)Date of publication of application : 04.03.1997

(51)Int.Cl.

C08G 77/42

C08G 77/14

C08L 83/10

(21)Application number : 07-230684

(71)Applicant : NIPPON UNICAR CO LTD

(22)Date of filing : 17.08.1995

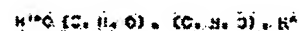
(72)Inventor : ANDO EIJI
ARAI KENJI
SUZUKI KENICHI

(54) NEW MODIFIED ORGANOPOLYSILOXANE COMPOUND AND EPOXY RESIN COMPOSITION FOR SEMICONDUCTOR SEALING USING THE SAME

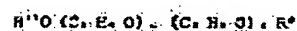
(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an organosiloxane compound derived from a specific method and capable of giving a composition having excellent resistance to water, adhesivity to an IC substrate, heat resistance, mold releasability, imprinting property and reliability by mixing to an epoxy resin.

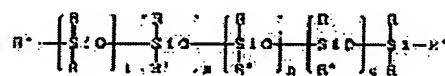
SOLUTION: An SiH group-containing organopolysiloxane compound is added with three species of compound composed of (A) a compound simultaneously having an epoxy group and an alkenyl group, (B) a compound of formula I (R₆ is H, a monofunctional hydrocarbon or acyl; (a) and (b) are each 0 or a positive number, and (a+b)≥1; R₁₀ is a monofunctional hydrocarbon containing an alkenyl) and (C) a compound of formula II (R₈ is an epoxy-containing group; (c) and (d) are each 0 or a positive number, and (c+d)≥1; R₁₁ is the same as R₁₀) in the presence of a catalyst to obtain a compound of formula II [R is H or a monofunctional hydrocarbon; R₁ is an epoxy-containing group; R₂ is an organic substituting group of formula IV (R₅ is a ≥2C bifunctional hydrocarbon); R₃ is an organic substituting group of formula V (R₇ is the same as R₅); R₄ is the same as one of R, R₁ and R₂; (l), (m) and (n) are each 0-1,000; (o) is 1-1,000, etc.].



I



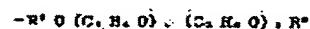
II



III



IV



V

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 01.02.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3602619

[Date of registration] 01.10.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-59385

(43) 公開日 平成9年(1997)3月4日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 G 77/42	NUK		C 0 8 G 77/42	NUK
77/14	NUG		77/14	NUG
C 0 8 L 83/10	LR Y		C 0 8 L 83/10	LR Y

審査請求 未請求 請求項の数3 F D (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平7-230684

(22) 出願日 平成7年(1995)8月17日

(71) 出願人 000230331

日本ユニカー株式会社

東京都千代田区大手町2丁目6番1号

(72) 発明者 安藤 英治

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町533グリーン

ンヒル鴨志田東3-205

(72) 発明者 新井 健次

神奈川県横浜市南区南太田町1-88

(72) 発明者 鈴木 賢一

神奈川県川崎市宮前区平2-12-7-404

(74) 代理人 弁理士 倉内 基弘 (外1名)

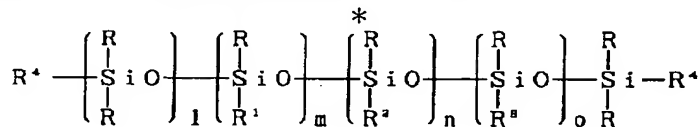
(54) 【発明の名称】 新規な変性オルガノポリシロキサン化合物およびそれを用いた半導体封止用エポキシ樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 新規な変性オルガノポリシロキサン化合物及びそれを用いた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供する。

* 【解決手段】 変性オルガノポリシロキサン化合物は次式(1)

【化1】



を有する。このものはエポキシ樹脂に配合して半導体封

止用エポキシ樹脂組成物を与える。

(2)

2

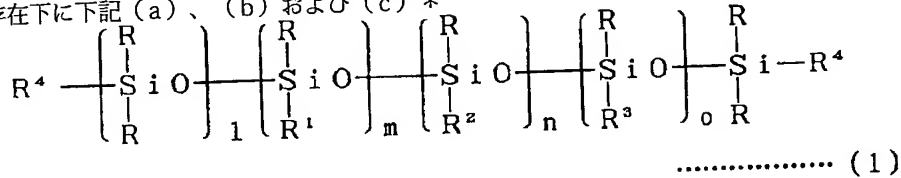
1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 SiH基含有オルガノポリシロキサン化合物に触媒の存在下に下記(a)、(b)および(c)*

*の三種の化合物を付加させることにより次式(1):

【化1】



【式中、Rは同一または相異なり、水素原子または1価の炭化水素基を表し、

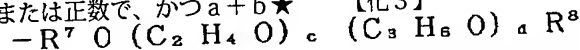
R¹はエポキシ基含有基を表し、
 $-R^5 O (C_2 H_4 O)_a (C_3 H_5 O)_b R^6$

【式中、R⁵は炭素原子数2以上の2価の炭化水素基を表し、R⁶は水素原子基、1価の炭化水素基またはアシル基を表し、aおよびbは0または正数で、かつa+b

★ ≥ 1 である)で表される有機置換基を表し、

R³は次式:

【化3】

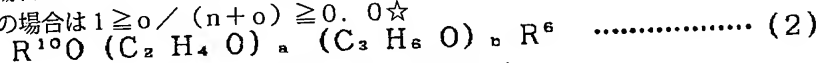


【式中、R⁷は炭素原子数2以上の2価の炭化水素基を表し、R⁸はエポキシ基含有基を表し、cおよびdは0または正数で、かつa+b ≥ 1 である)で表される有機置換基を表し、

R⁴はR、R¹またはR²のいずれかに定義された意味を表し、

1、m、nおよびoはそれぞれ平均数で1、mおよびnは0~1000でありoは1~1000であり、それらは1 $\leq 1+m+n+o \leq 1000$ を満足する値であり、更にR⁴がR²の場合は1 $\geq o / (n+o+2) \geq 0$ 、

0.2を、それ以外の場合は1 $\geq o / (n+o) \geq 0$ 、



【式中、R⁶、aおよびbは前記式(1)で定義したのと同じ意味を表し、R¹⁰はアルケニル基を含有する一価の炭化水素基を表す)で表される化合物、(c)次式



【式中、R⁸、aおよびbは前記式(1)で定義したのと同じ意味を表し、R¹¹はアルケニル基を含有する一価の炭化水素基を表す)で表される化合物。

【請求項2】 請求項1記載の方法により製造された請求項1における式(1)で表される変性オルガノポリシロキサン化合物。

【請求項3】 エポキシ樹脂および請求項2記載の変性オルガノポリシロキサン化合物を主剤とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、新規な変性オルガノポリシロキサン化合物の製造方法、その方法により製造された新規な変性オルガノポリシロキサン化合物およびそれを配合した半導体封止用エポキシ樹脂組成物に関する。更に詳しくは、成形時に優れた離型性を示し、成形後には耐水性、IC基盤との密着性および耐熱性が良

く、信頼性の優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を与える変性オルガノポリシロキサン化合物およびそれを配合した半導体封止用エポキシ樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術とその問題点】 従来より、半導体封止用にエポキシ樹脂組成物が用いられ、応力緩和や離型性の向上の目的で各種シリコンオイル類が配合されてきた。特公平2-36148号では、エポキシ基とポリオキシアルキレン基を有する変性オルガノポリシロキサンを配合することによりトランスファーモールドイング時の離型性、捺印性および密着性が優れた成形用エポキシ樹脂組成物が得られることが開示されている。しかし、この成形用エポキシ樹脂組成物は、耐水性、IC基盤との密着性、耐熱性が不十分であり、これを封止剤として用いて製造した半導体は信頼性が不十分であった。

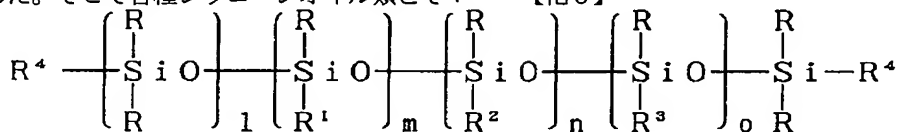
【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、半導体封止

用に有用な耐水性、I C基盤との密着性、耐熱性、トランスファーモールドリング時の離型性、捺印性が良く、信頼性の優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供することを課題とする。

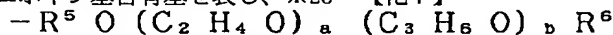
【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記課題について鋭意検討した結果、前記特公平2-36148号記載の変性オルガノポリシロキサンは、遊離した未反応原料のポリオキシアルキレン化合物を多く含むために、半導体封止用エポキシ樹脂組成物の耐水性、I C基盤との密着性、耐熱性に悪影響を与え信頼性を悪くしていることを見出した。そこで各種シリコンオイル類とそ*

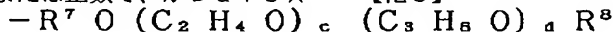


..... (1)

【式中、Rは同一または相異なり、水素原子または1価の炭化水素基を表し、R¹はエポキシ基含有基を表し、※20



【式中、R⁵は炭素原子数2以上の2価の炭化水素基を表し、R⁶は水素原子基、1価の炭化水素基またはアシル基を表し、aおよびbは0または正数で、かつa+b★



【式中、R⁷は炭素原子数2以上の2価の炭化水素基を表し、R⁸はエポキシ基含有基を表し、cおよびdは0または正数で、かつa+b≥1である）で表される有機置換基を表し、R⁴はR、R¹またはR²のいずれかに定義された意味を表し、1、m、nおよびoはそれぞれ平均数で1、mおよびnは0~1000でありoは1~1000であり、それらは1≤1+m+n+o≤1000を満足する値であり、更にR⁴がR²の場合は1≥o/(n+o+2)≥0、02を、それ以外の場合は1≥o/(n+o)≥0、02を満足する値であるが、ただし、mが0の場合はR⁴はR¹に定義された意味を表し、nが0の場合はR⁴はR²に定義された意味を表す】で表される変性オルガノポリシロキサン化合物の製造方法、その方法により製造された前記式(1)で表される変性オルガノポリシロキサン化合物およびそれを用いた半導体封止用エポキシ樹脂組成物に関する。

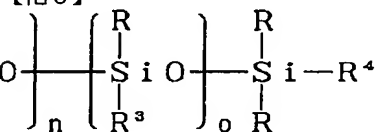
【0006】本発明の変性オルガノポリシロキサン化合物は上記式(1)で表される。式(1)中、Rは同一または相異なり、水素原子または1価の炭化水素基(例えばアルキル基、フェニル基、アルキルフェニル基、ナフチル基等)を表すが、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタ

*の製造方法について検討したところ、特定の方法により製造した新規な変性オルガノポリシロキサン化合物は、エポキシ基との反応性基とポリオキシアルキレン基を有しているが、未反応のポリオキシアルキレン化合物の殆どはエポキシ樹脂組成物の硬化時に反応するので、耐水性、I C基盤との密着性、耐熱性、トランスファーモールドリング時の離型性、捺印性等に悪影響を与えず、信頼性に優れた半導体を製造できることを見出し、更に検討した結果本発明を完成させた。

【0005】

【発明の実施の形態】従って、本発明は次式(1)：

【化6】



..... (1)

※R²は次式：

【化7】

★≥1である）で表される有機置換基を表し、R³は次式：

【化8】

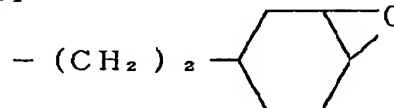


デシル基、ノナデシル基等の直鎖または分岐した炭素数1~18のアルキル基またはフェニル基であり特に好ましくはメチル基である。上記R¹基はエポキシ基含有基であり、具体的な例としては、

【化9】

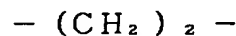


【化10】

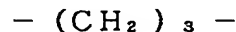


を挙げることができる。上記R²基中のR⁵基とR³基中のR⁷基はそれぞれ炭素原子数2以上の2価の炭化水素基を表し、例えば直鎖または分岐したアルキレン基が挙げられ、具体的な例としては、

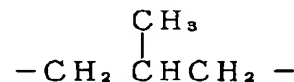
【化11】



【化12】

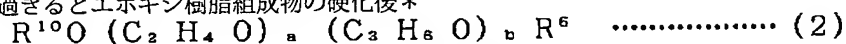


【化13】

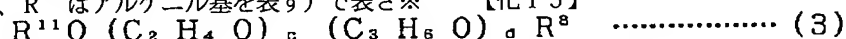


等を挙げることができる。上記 R^2 基中の R^6 基は上記 R で例示したのと同じ基またはアシル基から選択されるが好ましくは水素原子、メチル基、エチル基、ブチル基である。上記 R^3 基中の R^8 基は上記 R^1 基で例示したのと同様の基から選択される。

【0007】上記の(1)式中の n と o の比は、 R^1 が R^2 の場合は $1 \geq o / (n + o + 2) \geq 0.02$ を、それ以外の場合は $1 \geq o / (n + o) \geq 0.02$ を満足する値であることが必須で、好ましくは R^1 が R^2 の場合は $0.5 \geq o / (n + o + 2) \geq 0.05$ でそれ以外の場合は $0.5 \geq o / (n + o) \geq 0.05$ である。この比が大き過ぎるとエポキシ樹脂組成物の流動性が悪くなり、この比が小さ過ぎるとエポキシ樹脂組成物の硬化後*

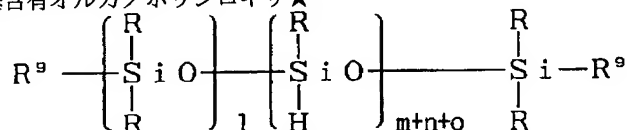


(式中、 R^6 、 a および b は前記式(1)で定義したのと同じ意味を表し、 R^{10} はアルケニル基を表す)で表さ※



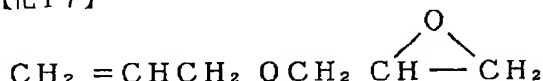
(式中、 R^8 、 a および b は前記式(1)で定義したのと同じ意味を表し、 R^{11} はアルケニル基を表す)で表される化合物を付加させる工程により製造される。

【0009】前記のSiH基含有オルガノポリシロキサ★

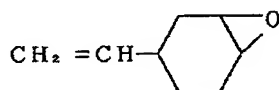


(式中、 R 、 1 、 m 、 n および o は前記式(1)で定義したのと同じ意味を表し、 R^9 は水素原子基または R と同じ意味を表す)で示される。また、エポキシ基とアルケニル基を同時に持つ化合物として、例えば次式：

【化17】



【化18】



等の化合物が挙げられる。

【0010】本発明においては、前記の式(1)で表される変性オルガノポリシロキサン化合物の製造時にSiH基含有オルガノポリシロキサン化合物に(b)を付加させた後に(c)を付加させることが必須である。逆の順番で製造した変性オルガノポリシロキサン化合物では、それとエポキシ樹脂組成物中の遊離ポリオキシアルキレン化合物量が多くなり、半導体封止用としては不適となるからである。尚、(a)の付加時期は特に限定されない。例えば(b)および(c)の付加前後に付加させたり、(b)または(c)と同時に付加させたりすれば良い。

*の遊離ポリオキシアルキレン成分が多くなり、いずれも半導体封止剤として不適となる。また、これと $1 \leq 1 + m + n + o \leq 1000$ および $a + b \geq 1$ である以外に 1 、 m 、 n 、 o 、 a および b の値は限定されないが、それらの好ましい値は、 $5 \leq 1 \leq 300$ 、 $1 \leq m \leq 50$ 、 $1 \leq n \leq 30$ 、 $1 \leq o \leq 20$ 、 $0 \leq a \leq 30$ 、 $1 \leq b \leq 30$ である。

【0008】上記の変性オルガノポリシロキサン化合物は、SiH基含有オルガノポリシロキサン化合物に触媒の存在下に(a)1分子中にエポキシ基とアルケニル基を同時に持つ化合物、(b)次式(2)：

【化14】

※れる化合物および(c)次式(3)：

【化15】

★化合物は、SiH基を3つ以上持ち、重合度が1000以下であること以外は特に限定されず、例えば次式：

【化16】

【0011】本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物はエポキシ樹脂と前記方法で製造された前記式(1)で示される変性オルガノポリシロキサン化合物を主成分とする。エポキシ樹脂は1分子中に2個以上のエポキシ基を有するものであれば特に限定されない。具体的にはビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、トリアジン核含有エポキシ樹脂およびこれらの変性樹脂等の1種または2種以上を用いることができる。

【0012】前記方法で製造された前記式(1)で示される変性オルガノポリシロキサン化合物は、必要に応じて1種または2種以上を用いることができる。その配合割合は限定されないが、エポキシ樹脂組成物100重量部に対して0.1重量部~20重量部、特に0.5~15重量部の範囲が好ましい。その理由は、配合割合が上記範囲以下であると、変性オルガノポリシロキサン化合物を配合しない場合と比較してトランスファーモルディング時の離型性、IC基盤との密着性、耐熱性、耐水性、捺印性等の向上が見られないし、上記範囲以上であると機械強度、電気特性、耐水性等がかえって低下することがあるからである。

【0013】本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物には、通常用いられる硬化剤を用いることができる。例

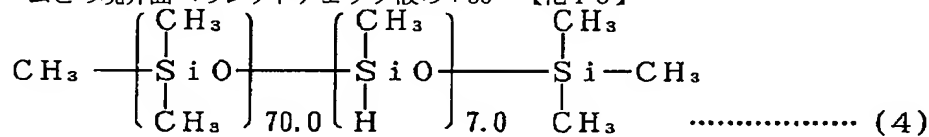
例えば無水フタル酸、無水ヘキサヒドロフタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、無水ピロメリット酸等の酸無水物、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、ジエチルアミノプロピルアミン、N-アミノエチルピペラジン、ビス(4-アミノ-3-メチルシクロヘキシル)メタン、メタンジアミン等のアミン化合物、あるいはフェノール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、テトラプロモビスフェノールA、クレゾール等のフェノール化合物、キシレン樹脂等を挙げることができる。これらの硬化剤以外に通常使用される硬化促進剤、例えばBDMA等の第3アミン類、イミダゾール類、有機リン化合物類等を使用することができる。更に本組成物には通常用いられる無機充填剤やシランカップリング剤、難燃剤、着色剤、離型剤、シリコンオイル類(ジメチルポリシロキサン及びメチル基の一部をエポキシ基、カルボキシル基、アミノ基等で変性したジメチルポリシロキサン等)、ゴム等の低応力剤等の添加剤を配合することができる。

【0014】

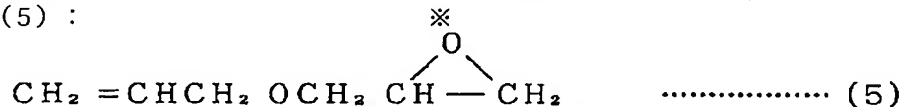
【実施例】以下、本発明を実施例により説明するが、本発明はこれに限定されるものではなく、本発明の技術思想を利用する実施態様は全て本発明の範囲に含まれるものである。実施例に先立ち半導体封止用エポキシ樹脂組成物の評価方法を示す。

【0015】耐水性

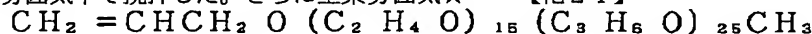
To-202トランジスタ20個取り金型を利用し、175℃で2分間の成形条件でトランスファー成形して半導体を封止した。この成形物をレッドチェック液に各100個浸漬し、24時間煮沸させた後取りだし、成形物とリードフレームとの境界面へのレッドチェック液の*



で示されるジメチルヒドロジェンポリシロキサン1.00モル、次式(5)：



で表される化合物2. 10モル、上記ジメチルヒドロジェンポリシロキサンと同重量のトルエンおよび白金濃度が上記ジメチルヒドロジェンポリシロキサンに対して20ppmとなる量の塩化白金酸の10%メタノール溶液を入れ窒素雰囲気下で撹拌した。さらに窒素雰囲気★



..... (6)

で表される化合物4. 51モルと前回と同量のトルエンを加えた後、窒素雰囲気下、80~100℃で反応さ

* 浸透具合を顕微鏡で観察し、僅かでも浸透が認められたものの個数を判定した。

耐熱性

175℃で8時間の成形条件でトランスファー成形した6×6×2.05mmの成形品を温度サイクルテスト(150℃~196℃)にかけ、500サイクルのテストをおこない、クラックの発生した成形品の個数を判定した。

金型離型性

10 断面積1cm²の円筒形キャビティを有する金型で、1.5gの各組成物を175℃で2分間圧縮成形し、成形直後の金型からの離型押し出し力(kg)をプッシュプルゲージで測定した。これを10回繰り返し、その最低と最高の値をとった。

捺印性

To-202トランジスタ20個取り金型を使用し、175℃で2分間トランスファー成形した成形表面に、マーケム社7261インクを捺印し、150℃で1時間インクを硬化させた後、インク表面にセロファンテープを密着させ、それを急激にはがしたときのテープ側へのインクの転写性を肉眼で判定した。これを10回繰り返し、10回テープ側に全く転写しないものを○印、テープ側に一部でも転写したものが1回以上あるものを×印とした。

【0016】変性オルガノポリシロキサン化合物の製造例

実施例1

機械的撹拌機、凝縮器、温度計および窒素挿入口を備えた3つ口フラスコに次式(4)：

【化19】

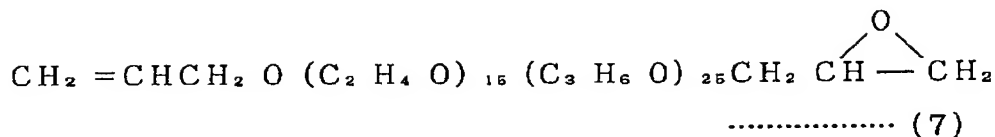
※【化20】

★下、80~100℃で反応させた。前記化合物が2.00モル付加したことを確認してから50℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去した。更に温度を40℃以下にして、次式(6)：

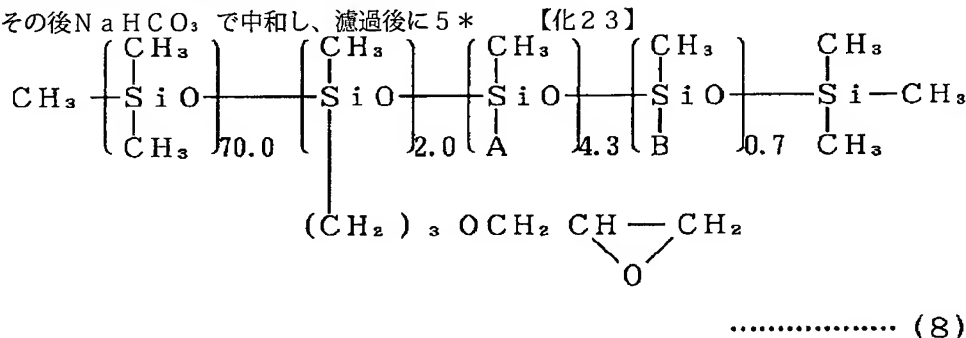
【化21】

せ、前記化合物が4.3モル付加したことを確認した。更に温度を40℃以下にして次式(7)：

【化22】



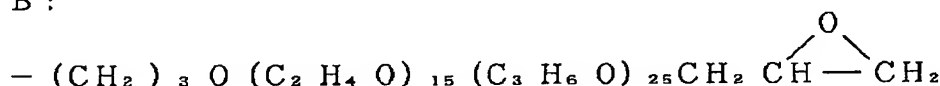
で表される化合物1. 19モルを加えた後、窒素雰囲気下、SiH基が確認されなくなるまで80~100℃で反応させた。その後NaHCO₃で中和し、濾過後に5* (8) :



A :



B :



で表される本発明の変性オルガノポリシロキサン化合物を得た。以下、これを化合物1とする。尚、上記の製造において、付加反応の進行は、残存SiH基量をKOHのアルコール溶液との水素ガス発生量により測定することにより確認した。

【0017】実施例2

実施例1と同様の反応装置に前記式(4)で示されるジメチルハイドロジェンポリシロキサン1.00モル、前記式(6)で表される化合物4.51モルおよび実施例1と同量のトルエンと塩化白金酸の10%メタノール溶液を入れ窒素雰囲気下で攪拌した。さらに窒素雰囲気下、80~100℃で反応させた。前記化合物が4.3モル付加したことを確認してから温度を40℃以下にして、前記式(7)で表される化合物1.19モルを加えた後、窒素雰囲気下、80~100℃で反応させ、前記化合物が0.7モル付加したことを確認した。更に温度を40℃以下にして前記式(5)で表される化合物2.10モルを加えた後、窒素雰囲気下、SiH基が確認されなくなるまで80~100℃で反応させた。その後NaHCO₃で中和し、濾過後に回転式蒸発装置により50℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去し、実施例1と同様に前記式(8)で表される本発明の変性オルガノポリシロキサン化合物を得た。以下、これを化合物2とする。

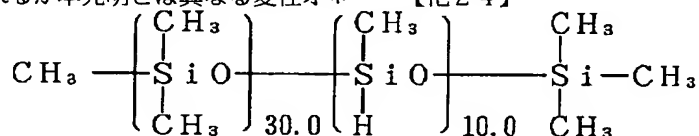
【0018】比較例1

実施例1と同様の反応装置に前記式(4)で示されるジメチルハイドロジェンポリシロキサン1.00モル、前記式(5)で表される化合物2.10モルおよび実施例1と同量のトルエンと塩化白金酸の10%メタノール溶液を入れ窒素雰囲気下で攪拌した。さらに窒素雰囲気下、80~100℃で反応させた。前記化合物が2.00モル付加したことを確認してから温度を40℃以下にして前記式(7)で表される化合物0.74モルを加え、窒素雰囲気下、80~100℃で反応させ、前記化合物が0.7モル付加したことを確認した。更に温度を40℃以下にして前記式(6)で表される化合物4.96モルを加えた後、窒素雰囲気下、SiH基が確認されなくなるまで80~100℃で反応させた。その後NaHCO₃で中和し、濾過後に回転式蒸発装置により50℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去し、実施例1と同様に前記式(8)で表されるが本発明とは異なる変性オルガノポリシロキサン化合物を得た。以下、これを化合物3とする。

【0019】比較例2

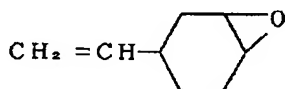
実施例1と同様の反応装置に前記式(4)で示されるジメチルハイドロジェンポリシロキサン1.00モル、前記式(7)で表される化合物0.74モルおよび実施例1と同量のトルエンと塩化白金酸の10%メタノール溶

液を入れ窒素雰囲気下で撹拌した。さらに窒素雰囲気下、80～100℃で反応させた。前記化合物が0.7モル付加したことを確認してから温度を40℃以下にして前記式(6)で表される化合物4.96モルを加え、窒素雰囲気下、80～100℃で反応させ、前記化合物が4.3モル付加したことを確認した。更に温度を40℃以下にして前記式(5)で表される化合物2.20モルを加えた後、窒素雰囲気下、SiH基が確認されなくなるまで80～100℃で反応させた。その後NaHCO₃で中和し、濾過後に回転式蒸発装置により50℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去し、実施例1と同様に前記式(8)で表されるが本発明とは異なる変性オ*

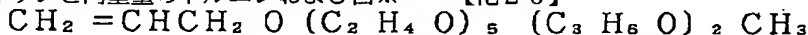


で示されるジメチルヒドロジェンポリシロキサン1.00モル、次式：

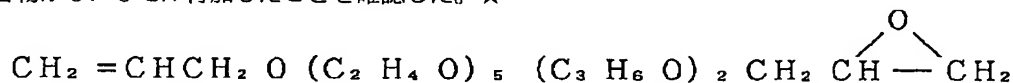
【化25】



で表される化合物1.60モルおよび上記ジメチルヒドロジェンポリシロキサンと同重量のトルエンおよび白※



で表される化合物10.00モルと前回と同量のトルエンを加えた後、窒素雰囲気下、80～100℃で反応させ、前記化合物が9.3モル付加したことを確認した。★



で表される化合物1.00モルを加えた後、窒素雰囲気下、SiH基が確認されなくなるまで80～100℃で反応させた。その後NaHCO₃で中和し、濾過後に5

*ルガノポリシロキサン化合物を得た。以下、これを化合物4とする。

【0020】比較例3

前記式(6)で表される化合物の使用量を4.70モルとした以外は比較例1と同様の方法で合成試験をおこなったが、式(6)で表される化合物の反応工程を10時間続けてもSiH基が検出され、その後は、更に10時間反応を続けてもSiH基の検出量に変化がなかったため、合成試験を中断した。

【0021】実施例3

実施例1と同様の反応装置に次式：

【化24】

※金濃度が上記ジメチルヒドロジェンポリシロキサンに対して20ppmとなる量の塩化白金酸の10%メタノール溶液を入れ窒素雰囲気下で撹拌した。さらに窒素雰囲気下、80～100℃で反応させた。前記化合物が1.5モル付加したことを確認してから50℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去した。更に温度を40℃以下にして、次式：

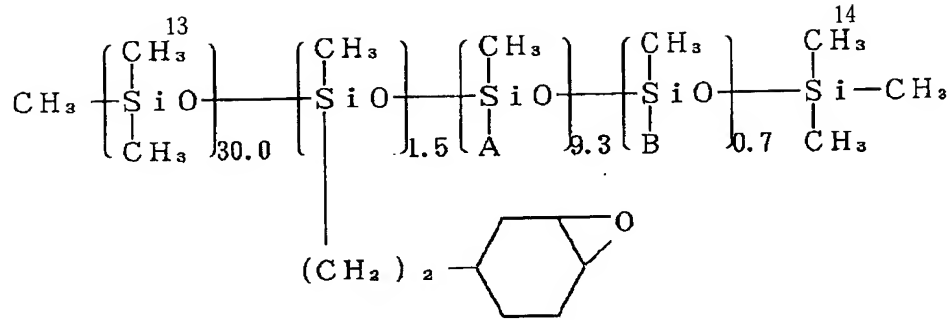
【化26】

★更に温度を40℃以下にして次式：

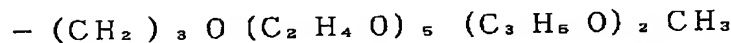
【化27】

0℃/1mmHgで溶媒と未反応原料を除去し、次式：
【化28】

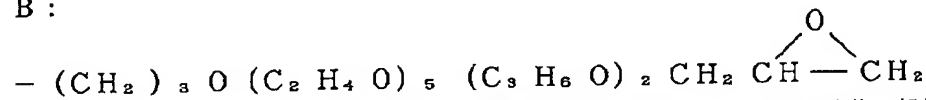
(8)



A :



B :



で表される本発明の変性オルガノポリシロキサン化合物を得た。以下、これを化合物6とする。尚、上記製造において、付加反応の進行は、残存SiH基量をKOHのアルコール溶液との水素ガス発生量により測定することにより確認した。

【0022】半導体封止用エポキシ樹脂組成物の調製
エポキシ当量220、軟化点80℃のクレゾールノボラックエポキシ樹脂75重量部、エポキシ当量400、軟化点70℃、臭素含有量45重量%の臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂25部、硬化剤として軟化点90℃のフェノールノボラック樹脂50部、無機質充填剤として溶融シリカ粉末420部、硬化促進剤として2-メチル-4-イミダゾール1部、顔料としてカーボンブラック2部、三酸化アンチモン20部および表1に示す種

* 類のオルガノポリシロキサン化合物2部を加え、80～90℃の熱ロールで混練し、冷却後粉碎して実施例1～3および比較例1～5の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

【0023】半導体封止用エポキシ樹脂組成物の評価
上記実施例1～3および比較例1の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて耐水性、耐熱性および金型離型性を試験し、結果を表1に示した。表1より本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は比較例よりも、優れた耐水性と耐熱性を持ち、更に従来の物と同程度の離型性を持つことが示され、半導体封止用に有用であることがわかった。

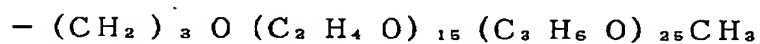
【0024】

【表1】

No.	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
変性 シリコーン	化合物 1	化合物 2	化合物 6	化合物 3	化合物 4	化合物 5*	無添加
耐水性 (個数)	1	2	3	20	25	28	100
耐熱性 (個数)	2	2	3	15	14	15	20
金型離型性 (kg)	2～3	2～3	2～3	2～3	2～3	2～3	10～12
捺印性	○	○	○	○	○	○	×

表1において、化合物5は次式を有する化合物である。

【化29】



【発明の効果】以上詳細に説明したように、本発明の方法により製造された新規な変性オルガノポリシロキサン化合物は、それを配合することにより耐水性、ＩＣ基盤との密着性、耐熱性、離型性、捺印性および信頼性の優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供することが

できるので産業上非常に有用である。また、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は耐水性、ＩＣ基盤との密着性、耐熱性、トランスファーマーモルディング時の離型性、捺印性が良く、信頼性が優れているので産業上非常に有用である。

THIS PAGE BLANK (USPTO)